

研究クラスター「G 水素モデル社会システムの実現に関する包括的研究」	
題目	粉体炭素材料添加による水素吸蔵合金層内の伝熱促進手法に関する検討 ～炭素添加による水素放出速度の変化に関する検討～
著者	納富 信、婁 相哲、黄 喆

第1章 はじめに
1.1 研究背景
温室効果ガスの大幅な削減要請から、日本ではこれに基づいた第五次エネルギー基本計画において、低炭素社会に向けた二次エネルギーとして水素エネルギーに注目している。水素は電気エネルギーなどに高効率で変換することができ、エネルギー媒体として極めて優れている。この水素を貯蔵・保存する方法の中で、水素吸蔵合金(MH)は高圧貯蔵や液化貯蔵と比較しても遜色ないエネルギー密度で水素を貯蔵でき、常温常圧で利用できる利点がある。しかし水素の吸蔵・放出は化学反応のため、MH 貯蔵タンク充てん層の有効熱伝導率が水素吸蔵・放出速度に大きく影響を与えることが知られている。これまで充填層内有効熱伝導率を促進するため、様々な方法が試みられてきたが、有効熱伝導率の改善のための伝熱促進体の体積が水素吸蔵・放出量に影響することから、ある定められた容積における水素吸蔵・放出量が減少することになる。そこで、伝熱促進体の利用が水素吸蔵・放出量に負の影響を発生させない方法を考案する必要がある。

1.2 研究目的
水素貯蔵容器を模擬した MH 充てん試験容器を用いて、MH 充てん層の体積を変えずに伝熱促進体として微小な炭素粉末を添加し、実験と数値計算から吸蔵・放出特性を評価し、炭素粉末の適用可能性を検討することを目的とする。

第2章 研究方法
2.1 活性化処理での MH 粒子状態変化と最大炭素添加量測定
使用する水素吸蔵合金は、室温付近で吸蔵・放出が可能でヒステリシスも小さく取り扱いやすい LaNi_{4.7}Al_{0.3}を採用した。MH は開き目 100 μm のふるいを通してから利用する。また、炭素粉末は合金層に良好な流通性と MH の空隙を出来る限り充填するため、平均粒径 6 μm の炭素粉末を使用した。容器、MH、炭素材料の物性値を表1に示す。

表1 実験用材料と熱物性			
	容器	MH	炭素粉末
材料	SUS316	LaNi _{4.7} Al _{0.3}	C
熱伝導率 W/(m・K)	16.7	12.5	118
密度 kg/m ³	7980	7580	475(嵩密度)
比熱 J/(kg・K)	590	420	691

本研究では、活性化・安定化処理をコントロールし、いくつかの崩壊段階の MH を準備した。それぞれの嵩密度を測定し、走査電子顕微鏡(SEM)で粒子の状態変化を観察した。
また、MH 充てん層空隙率、炭素粉末形状、MH 膨張率などの条件から、MH 充てん層体積を変化させない条件での MH100g 当たりの最大炭素粉末添加量は 8.94g と推定したが、実際の添加量測定実験では 100g の未処理 MH に対して 4.8g の炭素粉末添加が最大量となった。

2.2 MH 充てん層の有効熱伝導率測定
MH 充てん層の有効熱伝導率は、非定常法を用いて測定する。実運用時と同様に水素雰囲気下で有効熱伝導率を測定するべきであるが、水素と MH 合金との反応熱により測定が困難とことからヘリウム雰囲気下で測定を行った。

MH 充てん層は固相と流体相からなる 2 相で、熱流を一次元で表現できる Kunai・Smith の式を利用する。また、合金充てん層内の気体の熱伝導率の圧力依存性を示すため Chapman/Cowling の方程式を Kunii・Smith の式に代入して式(1)を得た。

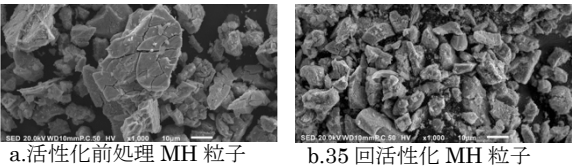
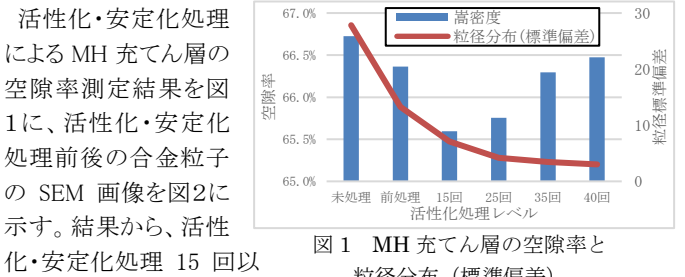
$$\frac{\lambda_e^0}{\lambda_{g(p)}} = \varepsilon + \frac{1-\varepsilon}{\phi + (2\lambda_{g(p)}/3\lambda_s)} \quad (1)$$

そして、炭素粉末混合による伝熱促進を予測するためには、(1)式に炭素粉末混合による伝熱促進効果を加味して構成される経験式(2)を導く必要がある。

λ_e^0 :MH 粉体層有効熱伝導率 W/mK
 $\lambda_{g(p)}$:圧力依存性を示す気体熱伝導率 W/mK
 ε :MH 空隙率
 λ_s :合金インゴット熱伝導率 W/mK
 ϕ ($\lambda_{g(p)}/\lambda_s$) の関数
 λ_c :炭素混入時有効熱伝導率 W/mK
 λ_c :炭素熱伝導率 W/mK
 x :炭素の質量充てん率

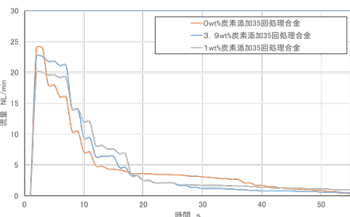
$$\lambda_e = \lambda_e^0 + 0.03\lambda_c x \quad (2)$$

第3章 研究成果
3.1 MH 粒子崩壊による空隙率変化の測定結果



前の合金は粒径のばらつきが大きくまた SEM 画像での単位面積での合金粒子亀裂が多いことから、充てん層の空隙率は亀裂、粒径分布、粒子の形など条件に影響されていると考える。

3.2 水素放出速度の測定結果
図3より、35 回活性化処理した合金は吸蔵した水素の 80%を吐き出すまで 37s 掛かった。そして 35 回活性化処理した合金に 1wt%炭素粉末を添加すると水素貯蔵量の 80%を吐き出すまで必要な時間は 30 sになり、さらに、35 回活性化処理した合金に最大炭素添加量 3.9wt%炭素粉末を添加した場合、吸蔵した水素を 80%吐き出すまで必要な時間は 28s になった。炭素粉末添加より MH 充てん層水素放出速度は最大約 24.3%上昇した、炭素粉末添加より水素放出速度促進効果を確認した。



第4章 まとめ
(1) 充てん層体積一定の条件では、炭素粉末添加の MH 充てん層の有効熱伝導率は MH 単体の場合より向上する。
(2) 炭素添加による水素放出速度の促進効果を把握した。